

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 8 月 25 日 (25.08.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/077515 A1

- (51) 国際特許分類: B01J 3/00, B01D 9/02, C07C 37/50, C08G 64/30, C08J 11/14 (74) 代理人: 大島 正孝 (OHSHIMA, Masataka); 〒160-0004 東京都 新宿区 四谷四丁目 3 番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002184
- (22) 国際出願日: 2005 年 2 月 8 日 (08.02.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2004-34596 2004 年 2 月 12 日 (12.02.2004) JP
特願2004-94672 2004 年 3 月 29 日 (29.03.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 帝人株式会社 (TEIJIN LIMITED) [JP/JP]; 〒541-0054 大阪府 大阪市 中央区南本町 1 丁目 6 番 7 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 北原 麻衣 (KI-TAHARA, Mai) [JP/JP]; 〒740-0014 山口県 岩国市 日の出町 2 番 1 号 帝人株式会社 岩国研究センター内 Yamaguchi (JP). 平田 滋己 (HIRATA, Masumi) [JP/JP]; 〒740-0014 山口県 岩国市 日の出町 2 番 1 号 帝人株式会社 岩国研究センター内 Yamaguchi (JP). 伴 哲夫 (BAN, Tetsuo) [JP/JP]; 〒740-0014 山口県 岩国市 日の出町 2 番 1 号 帝人株式会社 岩国研究センター内 Yamaguchi (JP). 佐脇 透 (SAWAKI, Toru) [JP/JP]; 〒740-0014 山口県 岩国市 日の出町 2 番 1 号 帝人株式会社 岩国研究センター内 Yamaguchi (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
— 補正書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: METHOD FOR DECOMPOSING POLYCARBONATE

(54) 発明の名称: ポリカーボネートの分解方法

(57) Abstract: Disclosed is a method for decomposing polycarbonate using water in the supercritical or subcritical state. By this decomposition method, a dihydroxy compound as a component of the polycarbonate can be collected in high purity and high yield. This decomposition method is characterized in that it uses no organic solvent and thus is environmental friendly, it has a simple process and a rapid decomposition rate, and it hardly causes a side reaction.

(57) 要約: ポリカーボネートを超臨界ないし亜臨界の状態にある水で分解せしめるポリカーボネートの分解法。この分解法によりポリカーボネートの構成成分であるジヒドロキシ化合物を高純度かつ高収率で回収することができる。この分解法は、有機溶媒を用いず環境に優しく、プロセスが簡易であり、かつ分解速度が速く、副反応が起こりにくい、という特長を有する。



WO 2005/077515 A1

明 細 書

ポリカーボネートの分解方法

5 技術分野

本発明は、超臨界ないし亜臨界の状態にある水を用いてポリカーボネートを分解する方法に関する。さらに詳しくは、ポリカーボネートを上記方法で分解して原料であるジヒドロキシ化合物を回収する方法に関する。

10 背景技術

ポリカーボネート樹脂は耐熱性、耐衝撃性、透明性に優れ、レンズ、コンパクトディスク等の光学材料として、さらに建築材料、自動車部品、OA機器等様々な用途に利用され、大量に生産、消費されている。その使用量は年々増加しており、今後更に増加することが予想される。

15 また、ポリカーボネート樹脂にアクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）樹脂等のオレフィン系樹脂をブレンドしたポリカーボネートコンパウンド樹脂も知られている。このポリカーボネートコンパウンド樹脂は、耐衝撃性、流動性、剛性、難燃性に優れ、かつ成形品の反りが少なく、家電、OA機器、電子電気部品、日用品分野をはじめ多様な用途において幅広く使用されている。

20 上記ポリカーボネート樹脂やポリカーボネートコンパウンド樹脂は市場に出回った後、ある程度の耐久期間が過ぎると新製品との代替などに伴って、通常廃棄されている。このような廃プラスチックの廃棄量は年々増加傾向にあり、その60%前後は単純焼却や埋め立てによって処分されている。しかし、単純焼却は大気中に炭酸ガスを放出するため、地球温暖化の観点からも問題がある。一方、埋め立てにより処分する場合、廃プラスチックは軽くてかさ張るため廃棄物の中
25 ても大きな容積を占め、埋立地などの廃棄物最終処分場の用地不足が切迫化してきた現在、将来に亘ってこのような処分方法が続けることは不可能である。従って、廃棄物処理の点から、また石油資源の枯渇という地球資源の観点からも、上記ポ

リカーボネート樹脂やポリカーボネートコンパウンド樹脂を市場から回収し、リサイクルすることが非常に重要になってきている。

- 5 廃プラスチックのリサイクル方法には、(1) 廃プラスチックをそのまま再利用するマテリアルリサイクル、(2) 廃プラスチックをモノマーへ解重合したり、化学的に分解して有用化学原料として回収するケミカルリサイクル、(3) 廃プラスチックを熱エネルギーとして回収するサーマルリサイクルなどに大別できる。これら複数のリサイクルのうち、ケミカルリサイクルは化学原料を回収するため、廃プラスチックから新たな合成樹脂や化成品を新規に合成することができ、広範囲な用途に利用できる。

- 10 ポリカーボネート樹脂のケミカルリサイクルのための分解方法としては、特開 2003-41049 号公報に、溶媒として超臨界状態のメタノールを用いてエステル交換を行い、ジヒドロキシ化合物並びにジメチルカーボネートを得る方法が開示されている。また、特公平 6-25086 号公報には、ポリカーボネート樹脂をアンモニア水溶液下で加水分解し、ジヒドロキシ化合物を得る方法が提案
- 15 されている。

- 一方、ポリカーボネートコンパウンド樹脂のリサイクルについては特開 2001-302844 号公報に、PC/ABS 樹脂アロイ中のポリカーボネート樹脂及び ABS 樹脂を共に溶解するハロゲン系有機溶媒と、アンモニア水溶液とが存在する溶液中にて、廃プラスチック中のポリカーボネート樹脂を化学的に分解し
- 20 て、分解生成物からビスフェノール A 及び尿素を有用化学原料として回収する方法が報告されている。しかし、上記方法はハロゲン系有機溶媒を大量に使用するため環境への悪影響が懸念され、かつアンモニア水溶液の中和等の後処理が煩雑で経済性を著しく損なうことから、ポリカーボネートコンパウンド樹脂を大量に処理してリサイクルするには不適である。

25

発明の開示

本発明の目的は、ポリカーボネートを有機溶媒を用いずに分解する方法を提供することにある。

本発明の他の目的は、副反応を抑制して、大きい分解速度でポリカーボネートを分解する方法を提供することにある。

本発明のさらに他の目的は、ポリカーボネートを分解してポリカーボネートの原料であるジヒドロキシ化合物を高純度、高収率で回収することを可能とする、

- 5 工業的に簡便で且つ有利な、ポリカーボネートの分解方法を提供することにある。

本発明のさらに他の目的は、芳香族ジヒドロキシ化合物を高濃度で安定に含有する水溶液を提供することにある。

本発明のさらに他の目的および利点は以下の説明から明らかになる。

本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第 1 に、

- 10 ポリカーボネートを超臨界ないし亜臨界の状態にある水で分解せしめることを特徴とするポリカーボネートの分解法によって達成される。

本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第 2 に、

温度が 10～100℃の範囲にあり、0.1～10 MPa の範囲の圧力下にありそして芳香族ジヒドロキシ化合物を 1 重量%以上の濃度で水中に溶解している、

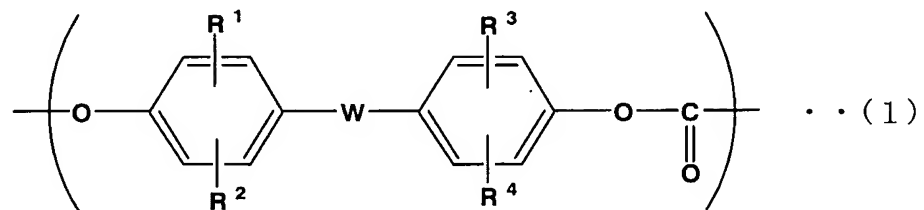
- 15 ことを特徴とする芳香族ジヒドロキシ化合物水溶液によって達成される。

発明の好ましい実施形態

本発明で分解の対象とするポリカーボネートは、ポリカーボネートそのものでも、あるいはポリカーボネートと他の熱可塑性樹脂からなる熱可塑性組成物中の

- 20 当該ポリカーボネートであってもよい。

ポリカーボネートは、脂肪族ポリカーボネート、脂環式ポリカーボネートおよび芳香族ポリカーボネートのいずれでもよい。このうち、芳香族ポリカーボネートが好ましく、例えば下記式 (1)



ここで、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は互いに独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数6～10のシクロアルキル、炭素数6～10のアリール基または炭素数7～10のアラルキル基またはハロゲン原子であり、そしてWは単結合、炭素数1～10のアルキレン基、炭素数2～10のアルキリデン基、炭素数6～10のシクロアルキレン基、炭素数6～10のシクロアルキリデン基、炭素数8～15のアルキレンーアリーレンーアルキレン基、酸素原子、硫黄原子、スルホキシド基またはスルホン基である、

5 で表される繰り返し単位からなるものがさらに好ましい。

炭素数1～10のアルキル基は直鎖状であっても分岐鎖状であってもよい。その例としては、メチル、エチル、プロピル、ブチル、オクチル、デシル等を挙げることができる。炭素数6～10のアリール基としては、例えばフェニル、トリル、クミル、ナフチル等を挙げることができる。炭素数7～10のアラルキル基としては、例えばベンジル、2-フェネチル、2-メチル、2-フェニルエチル等を挙げることができる。

15 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 としては、互いに独立に、水素原子、メチル基およびt-ブチル基が好ましく、水素原子が特に好ましい。

また、Wの定義も上記のとおりである。

炭素数1～10のアルキレン基は直鎖状であっても分岐鎖状であってもよい。その例としては、メチレン、1, 2-エチレン、2, 2-プロピレン、2, 2-ブチレン、1, 1-デシレン等を挙げることができる。

炭素数2～10のアルキリデン基としては、例えばエチリデン、プロピリデン、ブチリデン、ヘシリデン等を挙げることができる。

炭素数6～10のシクロアルキレン基としては、例えば1, 4-シクロヘキシレン、2-イソプロピル-1, 4-シクロヘキシレン等を挙げることができる。

25 炭素数6～10のシクロアルキリデン基としては、例えばシクロヘキシリデン、イソプロピルシクロヘキシリデン等を挙げることができる。

炭素数8～15のアルキレンーアリーレンーアルキレン基としては、例えばm-ジイソプロピルフェニレン基などが挙げられる。

Wとしては、シクロヘキシリデン基、2, 2-プロピリデン基が好ましく、2, 2-プロピリデン基が特に好ましい。

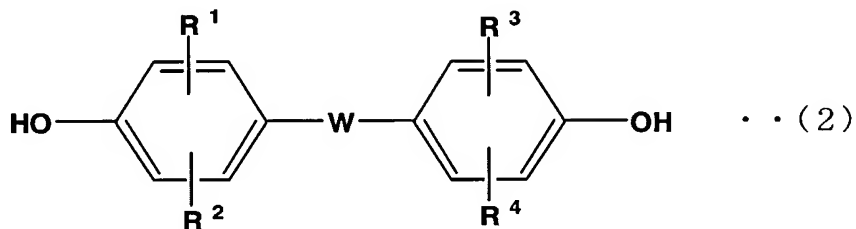
また、本発明で用いられるポリカーボネートの分子量は特に限定されるものではないが、好ましくは粘度平均分子量が10,000～250,000である。

- 5 ポリカーボネートは、それ自体公知の方法、例えばジヒドロキシ化合物とホスゲンとの界面重縮合法あるいはジヒドロキシ化合物とジアルキルカーボネートとの熔融重縮合法等により製造される。

本発明は、製造法の如何にかかわらず、分解の対象とすることができる。

- 10 また本発明においては、製品の製造途中に生じた不良品、屑ポリマー、さらに使用済みCD等のポリカーボネート廃棄物も、分解の対象として用いることが可能である。この場合、該廃棄物はAl記録層などの不純物を含有していても良く、そのまま分解に供しても、不純物を除去した後に分解に供しても良い。

上記ヒドロキシ化合物のうち、芳香族ポリカーボネートを与える芳香族ジヒドロキシ化合物としては、下記式(2)



15

ここでR¹、R²、R³、R⁴およびWの定義は上記式(1)に同じである、で表わされるものを好ましいものとして挙げることができる。

- かかる芳香族ジヒドロキシ化合物の具体例としては、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(すなわちビスフェノールA)、ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)エタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、1, 1-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)-1-フェニルエタン、2-(4'-ヒドロキシフェニル)-2-(3'-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)ブタン、1, 1-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)イソブタンおよび4, 4'-ジヒドロキシジフ
- 20
- 25

ェニル等が挙げられる。これらは単独で、あるいは2種以上混合して使用してもよい。上記例示の化合物のうち、本発明において特に好ましく分解の対象として用いられる芳香族ポリカーボネートは2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンを用いた芳香族ポリカーボネートである。

- 5 また、上記ポリカーボネートとともに熱可塑性組成物を形成する他の熱可塑性樹脂としては、特に限定されるものではないが、オレフィン系樹脂が好ましい。

- かかるオレフィン系樹脂としては、通常ポリカーボネートと組成物を形成して用いられるものであればいずれでも良いが、代表的な樹脂として例えばアクリロニトリル-ブタジエンスチレン樹脂(慣用的にABS樹脂といわれる)、ポリ
10 スチレン樹脂(PS樹脂)、ポリメチルメタクリレート樹脂(PMMA樹脂)、ポリエチレン樹脂(PE樹脂)などを挙げることができる。なかでもABS樹脂は耐衝撃性、耐熱耐油性、および加工性を併せ持ちその市場が大きいために、特に広く用いられている。また、上記熱可塑性組成物は、好ましくはポリカーボネートが10～95重量%より好ましくは40～90重量%、他の熱可塑性樹脂が5
15 ～90重量%、より好ましくは10～60%の割合からなる。

- 上記ABS樹脂とは、ジエン系ゴムと芳香族ビニル系単量体、シアン化ビニル系単量体および必要に応じてこれらと共重合可能な他のビニル系単量体からなる単量体を重合してなる樹脂であり、上述のジエン系ゴムの存在下に単量体を重合してなるグラフト重合体または該グラフト重合体と単量体を重合してなる共重合
20 体との混合物である。本発明はかかるグラフト重合体および共重合体のいずれにも適用可能である。ABS樹脂の製造法としては、乳化重合、懸濁重合、塊状重合、溶液重合またはこれらを組み合わせた方法等が挙げられる。

- 上記ジエン系ゴムとしては、例えばガラス転移温度が0℃以下のポリブタジエン、スチレン-ブタジエン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体等が
25 列挙される。

上記芳香族ビニル系単量体としては、例えばスチレン、 α -メチルスチレン、 o -メチルスチレン、 m -メチルスチレン、 p -メチルスチレン、 t -ブチルスチレン、 α -メチルビニルトルエン、ジメチルスチレン、クロルスチレン、ジク

ロルスチレン、ブロムスチレン、ジブロムスチレン、ビニルナフタレン等が挙げられる。これらは一種または二種以上用いることができる。これらのうち、特にスチレンが一般的に用いられる。

- 5 上記シアン化ビニル系単量体としては、例えばアクリロニトリル、メタクリロニトリル、フマロニトリル等が挙げられる。これらは一種または二種以上用いることができる。これらのうち、特にアクリロニトリルが一般的に用いられている。

- また、上記芳香族ビニル系単量体およびシアン化ビニル系単量体と共重合可能な他の単量体としては、例えばアクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、マレイン酸無水物、シトラコン酸無水物の如き不飽和カルボン酸又は不飽和ジカルボン酸無水物、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレートの如きの不飽和カルボン酸アルキルエステル、マレイミド、メチルマレイミド、エチルマレイミド、N-フェニルマレイミド、O-クロル-N-フェニルマレイミドの如きマレイミド系単量体等が挙げられる。これらは一種または二種以上で用いられる。

- 15 上記熱可塑性樹脂組成物は、さらにリン系難燃性化合物、ハロゲン系難燃性化合物、ゴム状物質、繊維／非繊維状フィラー等の添加剤を含有していてもよい。

リン系難燃性化合物としては、例えば赤リン、ホスフィン、次亜リン酸、亜リン酸、メタリン酸、ピロリン酸、無水リン酸の如き無機系リン化合物、または公知の有機リン酸エステル化合物が挙げられる。

- 20 ハロゲン系難燃性化合物としては、例えばテトラブロモビスフェノールAおよびその誘導体、テトラブロモビスフェノールS、ポリブロモジフェニルエーテル、臭素化ポリカーボネートオリゴマーおよびその変性体、臭素化エポキシオリゴマーおよびその変性体、臭素化フェノキシ樹脂、臭素化ポリスチレン、臭素化フェニレンエーテル、トリブロモフェノキシエタン、臭素化トリアジン化合物、塩素化縮合脂環式化合物などが挙げられる。

25 ゴム状物質としては、例えばガラス転移温度が-100℃以上かつ50℃以下の重合体、または該重合体が共重合されてなる共重合体、イソプレン系、ブタジエン系、オレフィン系、ポリエステルエラストマー系、アクリル系重合体などが

挙げられる。これらはホモポリマーであっても、コポリマーであってもよい。これらのうち広汎に用いられるものとしては、ブタジエン系、オレフィン系共重合体が挙げられる。ブタジエン系共重合体としては、スチレンとの共重合体であるスチレンーブタジエンブロック共重合体、あるいはその水添物が使用される。さらには、酸成分との3元系共重合体も有用であり、具体的には、アクリル酸ーブタジエンスチレン共重合体、カルボン酸／カルボン酸無水物含有酸化合物ーブタジエンスチレン共重合体などが挙げられる。

繊維状フィラーとしては、熱可塑性樹脂組成物の目的とする強化の度合いにもよるが、アスペクト比で2～100のものが挙げられる。具体的には、ガラス繊維、カーボン繊維、酸化チタンウィスカー、繊維状ワラストナイトなどが挙げられる。

非繊維状フィラーは、強度と寸法安定性との改良が同時に得られることから、幅広く用いられる。形状的としては、板状、粒状、無定形いずれであってもよい。具体例としては、タルク、マイカ、クレー、シリカ、ガラスフレーク、ガラスビーズ、中空フィラーなどが挙げられる。フィラーは単独で、あるいは2種以上組み合わせられて添加されていてもよい。

また、本発明における上記熱可塑性樹脂組成物は、上記添加物の他に、必要に応じて、脂環式飽和炭化水素樹脂、高級脂肪酸エステル、石油炭化水素類、芳香族炭化水素系石油樹脂、ポリオキシアルキレン、テルペン類、ワックス類、フッ素系樹脂、酸化防止剤、離型剤、帯電防止剤、安定剤、紫外線吸収剤、顔料などを含有していてもよい。

本発明の分解法は、上記の如きポリカーボネートあるいは熱可塑性樹脂組成物中のポリカーボネートを超臨界ないし亜臨界の状態にある水で分解する。以下超臨界状態にある水を超臨界水、亜臨界状態にある水を亜臨界水ということがある。本発明の分解反応により、ポリカーボネートが分解して相当するジヒドロキシ化合物と二酸化炭素が生成される。

一般に、超臨界流体とは臨界温度、臨界圧力を越えた状態の物質を示す。超臨界水とは臨界温度374℃以上、臨界圧力22MPa以上の水を示す。また、亜

臨界水とは温度 350℃以上かつ圧力 18 MPa 以上であって、超臨界状態ではない水を示す。超臨界または亜臨界状態の水は、その温度・圧力に対応して密度、イオン積、イオン濃度、誘電率等の諸物性値が幅広く変動することが知られており、これらを制御することが容易である。この結果、超臨界水または亜臨界水中における反応は、温度や圧力ごとに異なった酸・塩基触媒効果および溶媒効果を受ける可能性がある。さらに超臨界水または亜臨界水は粘度が液体に比べて小さいため物質の拡散が速く、超臨界水または亜臨界水中での反応は通常の液体中の反応に比べて拡散律速になりにくいという利点もある。また、実用的な側面から見ると、水は最も安価である上、無毒、難燃性であり環境への負荷が少なく、熱安定性に富み、酸化もされない、理想的な溶媒であるといえる。

本発明における分解は、超臨界水または亜臨界水の温度が前記臨界温度である 374～500℃で行うことが好ましく、374～430℃で行うことがより好ましい。温度が 374℃より低いと、ポリカーボネートの分解速度が著しく低下し、未反応成分の残存等の問題が生じるため、好ましくない。また 500℃を超えると、得られたジヒドロキシ化合物の熱分解反応が急速に進行して目的とするジヒドロキシ化合物以外のヒドロキシ化合物やその誘導体が多量に副成するだけでなく、熱可塑性樹脂組成物の場合には ABS 樹脂等の熱可塑性樹脂の分解も進行して多岐にわたる化合物を生成し、生成物の純度低下ならびに回収工程の複雑化を引き起こす恐れがあるため好ましくない。

また、分解は 18～40 MPa の圧力条件下で行うことが好ましく、20～30 MPa がさらに好ましい。圧力が 40 MPa 以上であると、工業プロセスにおいて多量なエネルギーコストを要し、安全面、経済面において多大な負荷がかかるため、好ましくない。また、18 MPa より低いと前述の亜臨界水特有の諸物性が発現しにくくなるため、好ましくない。

本発明は、超臨界水または亜臨界水のイオン積 (K_w) が $10^{-15} \text{mol}^2 / \text{kg}^2$ 以下の条件で行うことが好ましく、 $10^{-17} \text{mol}^2 / \text{kg}^2$ 以下で行うのがより好ましい。この状態で処理を行うと、ポリカーボネートまたは樹脂組成物中のポリカーボネートを非常に短時間で分解し、ジヒドロキシ化合物を高選択率

で得ることができる。これは、反応場のイオン濃度の低下がポリカーボネートの分解にとって最適な環境を提供することによると考えられる。イオン積が $K_w = 1.0 \times 10^{-15} \text{mol}^2/\text{kg}^2$ より大きい条件で処理を行うと、ポリカーボネートの分解速度が遅くなり、好ましくない。さらにこの条件で反応時間を長くした場合、

5 ポリカーボネートの分解と同時にジヒドロキシ化合物の分解反応が進行してその純度および収率が大幅に低下するため、好ましくない。また、本発明においてイオン積の下限は特に限定されるものではないが、 $1.0 \times 10^{-23} \text{mol}^2/\text{kg}^2$ とするのがより好ましい。

さらに、前記超臨界水または亜臨界水の誘電率は 10 以下であることが好ましく、より好ましくは 5 以下である。誘電率は物質内で電荷とそれによって与えられる力との関係を示す係数であり、溶媒の極性の指標となる。室温での水の誘電率は約 80 と非常に大きいため、電解質等の無機物はよく溶けるが、有機物はほとんど溶解しない。しかし温度を上げると誘電率は徐々に低下し、374℃以上の超臨界水ないし亜臨界水では 10 程度と極性の小さな有機溶媒と同程度の値に

10 なる。その結果、有機物はよく溶けるが無機物はほとんど溶けないという、通常の水とは逆の現象が起こる。本発明においては、誘電率を 10 以下とすることでポリカーボネートまたは熱可塑性樹脂組成物への超臨界水ないし亜臨界水の浸透性を向上させ、該超臨界水ないし亜臨界水をポリカーボネートと効率的に接触させることができる。また一方で、分解生成物であるジヒドロキシ化合物を超臨界

15 水または亜臨界水に溶解・分散させ、その二次分解を抑制する効果もある。誘電率がこの値より大きいと超臨界水の樹脂への浸透性が低下するのみならず、ジヒドロキシ化合物と超臨界水または亜臨界水とが相分離して、分離した相界面でジヒドロキシ化合物の分解が進行するので好ましくない。

本発明における反応時間は特に限定されるものではないが、上記条件において、

25 例えば 1 分未満～5 分という非常に短時間でポリカーボネートまたは熱可塑性樹脂組成物中のポリカーボネート樹脂を分解することができる。反応時間を延ばすと得られたジヒドロキシ化合物の分解が進行して純度が低下する上、工業プロセスにおいては単位時間当たりの処理量が少なくなる、または反応容器の容積が大

きくなるため、好ましくない。

本発明の分解法はポリカーボネートが芳香族ポリカーボネートでありそして分解生成物として芳香族ジヒドロキシ化合物を生成する方法で好ましく実施される。芳香族ポリカーボネートが前記式（１）で表わされる繰返し単位からなるとき、

- 5 分解生成物は前記式（２）で表わされる芳香族ジヒドロキシ化合物である。

- 上記反応によって生成されたジヒドロキシ化合物が芳香族ジヒドロキシ化合物である場合、これは温度１０℃～１００℃、圧力０．１ＭＰa～１０ＭＰaの範囲内において１重量％以上の濃度で水に溶解した準安定な均一水溶液として回収される。芳香族ジヒドロキシ化合物の水への溶解度は２５℃、０．１ＭＰaの温度圧力条件において約１００ｐｐｍであることが公知であり、通常の条件ではほとんど溶解しない。従って上記水溶液は、超臨界水または亜臨界水に芳香族ジヒドロキシ化合物が溶解した状態から降温降圧することにより得られそして従来知られている芳香族ジヒドロキシ化合物水溶液より高い濃度で芳香族ジヒドロキシ化合物を含有する全く新規な水溶液であるといえる。分解生成物が上記状態で得られることは、工業プロセスにおいて生成物の精製プロセスおよび回収プロセスの簡素化が可能になるのみならず、配管や弁の閉塞を防ぐことができるため、非常に好ましい。本発明において、水溶液中の芳香族ジヒドロキシ化合物は公知の晶析操作により精製および回収することができ、これにより高純度の芳香族ジヒドロキシ化合物を得ることができる。

- 20 なお、分解対象物が熱可塑性組成物であるときには、生成されるジヒドロキシ化合物は上記と同じ均一水溶液として得られる。

- 一方、ＡＢＳ樹脂の如き熱可塑性樹脂は分解速度が遅く固形分として残存するため、固液分離操作を加えることによりジヒドロキシ化合物水溶液を容易に回収することが可能である。熱可塑性樹脂組成物がフィラー等の添加物を含有している場合は、該添加物も固形分として残存するため、同様に固液分離操作を加えればよい。分離後、水溶液中の芳香族ジヒドロキシ化合物は冷却等の公知の晶析操作により精製および回収することができ、これにより高純度の芳香族ジヒドロキシ化合物を得ることができる。また、処理条件によってはＡＢＳ樹脂の如き熱可

塑性樹脂が分解されて油分に変換する場合があるが、この場合には工業プロセスにおいては水層と油層との液液分離により、水層からジヒドロキシ化合物を容易に回収することが可能である。

本発明の分解法は公知のポリマー分解処理装置を用いて実施することができる。

- 5 超臨界水または亜臨界水による加水分解を行う反応器と、この反応器にポリカーボネートまたは熱可塑性樹脂組成物と超臨界水ないし亜臨界水を供給する供給手段と、反応器内の超臨界水ないし亜臨界水で加水分解された後の処理流体を濾過体で濾過して不溶性不純物を除去する濾過手段と、濾過処理された処理流体を水と分解生成物であるジヒドロキシ化合物とに分離する手段と、分離手段により分離された水を処理する水処理手段とを備えていることが好ましい。ここでリサイクル原料のポリカーボネートまたは熱可塑性樹脂組成物は、（１）粉碎してスラリーとして、（２）加熱して熔融状態にして、（３）溶媒に溶解した状態で、あるいは（４）固形のままで、反応容器に供給される。リサイクル原料中の不純物は事前に圧延等の処理により除去しても良く、（２）または（３）においては、ろ過手段を反応容器の前段に設置して除去しても良く、また上記不純物除去手段は併用されても良い。反応容器は流通式、半回分式、またはバッチ式反応器の何れでもよいが、流通式を用いると処理量を増やすことができるので好ましい。また、反応溶媒、原料は、流通式、あるいは半回分式装置においては熱交換器等によりあらかじめ加熱され、反応容器に供給することが可能である。水とジヒドロキシ化合物とを分離する手段は特に限定されるものではない。本発明によれば冷却操作のみにより高純度のジヒドロキシ化合物を晶析させることが可能であり、晶析したジヒドロキシ化合物は、遠心分離等の固液分離手段で分離することができる。分離後の水は、公知の水処理手段で所定の水質になるように処理して再び反応器に返送することにより、反応器内で良好な反応制御性を確保しつつ超臨界水または亜臨界水の補給用水として処理水を再利用し、経済的な水サイクルを形成することができる。また、所定の水質の補給水、例えば純水レベルの水質に処理した水を補給水として反応器に供給することにより、反応器内で良好な反応制御性を確保できるので、ジヒドロキシ化合物を高純度、かつ高収率で回収することがで
- 10
- 15
- 20
- 25

きる。

- 本発明により得られたジヒドロキシ化合物を必要に応じて精製し、リサイクルして前記カーボネート前駆体と重合することにより、高品質、高グレードのポリカーボネートを製造することができる。さらに、ポリカーボネートのコンパウンド樹脂、ならびにジヒドロキシ化合物を原料とする他の樹脂への適用も可能である。上記重合は公知の方法の何れを用いてもよいが、界面重合法または溶融重合法が好ましい。

実施例

- 以下、実施例により本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれにより何等限定を受けるものではない。

実施例 1

- 全内容積 6 mL の SUS 316 製チューブ型反応管に、ポリカーボネート樹脂ペレット（帝人化成（株）製 AD-5503）0.11 g を入れ、圧力が 2.5 MPa となるように水 1.1 g を仕込み、密閉した。反応管内をアルゴン置換して不活性雰囲気とした後、400℃に予熱したサンドバス中に浸漬させ、3分間保持した。ここで、上記条件におけるイオン積 $K_w = 10^{-20} \text{ mol}^2/\text{kg}^2$ 、比誘電率 = 2 であった。その後、反応管を水に浸漬させて室温まで急冷し、内容物をガラス瓶に取り出したところ、20℃、0.1 MPa の温度圧力条件下にて内容物は無色透明の均一水溶液であり固形分は全く認められなかった。また、取り出しの際に気体の発生が確認された。さらに、上記水溶液を一定時間静置したところ、針状結晶の析出が見られた。

- 結晶が混在した上記水溶液にジエチルエーテルを加えて攪拌し、エーテル相をガスクロマトグラフィー（HP 5890）で分析した結果、0.1 g の 2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン（すなわちビスフェノール A）が含まれていることが分かった。従って、回収直後の 2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン水溶液の濃度は、20℃、0.1 MPa の状態で、約 10 重量%と計算される。上記 2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパンの回

収量は理論収率の9.9%であり、上記方法によってポリカーボネートが完全に分解され、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンと二酸化炭素のみを容易に回収できることが確認された。

実施例2

- 5 反応管にポリカーボネート樹脂ペレット0.08gを入れ、圧力が2.5MPaとなるように水0.84gを仕込み、420℃に予熱したサンドバス中に浸漬した以外は実施例1と同様にして分解を行った。上記条件におけるイオン積、比誘電率を表1に示した。反応後、内容物をガラス瓶に取り出したところ、20℃、0.1MPaの温度、圧力条件下にて内容物は無色透明の均一水溶液であり、固
- 10 形分は全く認められなかった。実施例1と同様の方法により水溶液中に含まれる2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンの量を求め、表1に示した。

実施例3

- 反応管にポリカーボネート樹脂ペレット0.06gを入れ、圧力が2.0MPaとなるように水0.60gを仕込み、400℃に予熱したサンドバス中に浸漬した
- 15 た以外は実施例1と同様にして分解を行った。上記条件におけるイオン積、比誘電率を表1に示した。反応後、内容物をガラス瓶に取り出したところ、20℃、0.1MPaの温度、圧力条件下にて内容物は無色透明の均一水溶液であり、固形分は全く認められなかった。実施例1と同様の方法により水溶液中に含まれる2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノールA)の量を
- 20 求め、表1に示した。

実施例4

- 反応管にポリカーボネート樹脂ペレット0.07gを入れ、圧力が2.5MPaとなるように水0.66gを仕込み、450℃に予熱したサンドバス中に浸漬した
- 25 た以外は実施例1と同様にして分解を行った。上記条件におけるイオン積、比誘電率を表1に示した。また、分解により得られた水溶液中に含まれる2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノールA)の量を求め、表1に示した。

実施例5

反応管にポリカーボネート樹脂ペレット 0.21 g を入れ、圧力が 3.0 MPa となるように水 2.1 g を仕込み、400℃に予熱したサンドバス中に浸漬した以外は実施例 1 と同様にして分解を行った。上記条件におけるイオン積、比誘電率を表 1 に示した。反応後、内容物をガラス瓶に取り出したところ、20℃、0.1 MPa の温度圧力条件下にて内容物は無色透明の均一水溶液であり、固形分は全く認められなかった。実施例 1 と同様の方法により水溶液中に含まれる 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノール A) の量を求め、表 1 に示した。

実施例 6

- 10 全内容積 6 mL の SUS 316 製チューブ型反応管に、ポリカーボネートを約 50 重量%含有するポリカーボネート/ABS 樹脂ペレット(帝人化成(株)製) 0.2 g を入れ、圧力が 2.5 MPa となるように水 1.1 g を仕込み、密閉した。反応管内をアルゴン置換して不活性雰囲気とした後、400℃に予熱したサンドバス中に浸漬させ、4 分間保持した。ここで、上記条件におけるイオン積
- 15 $K_w = 1.0 \times 10^{-20} \text{ mol}^2 / \text{kg}^2$ 、比誘電率 = 2 であった。その後、反応管を水に浸漬させて室温まで急冷し、内容物をガラス瓶に取り出したところ、内容物は ABS 樹脂固形分を含む透明の水溶液であった。また、取り出しの際に気体の発生が確認された。さらに、上記水溶液を一定時間静置したところ、針状結晶の析出が見られた。
- 20 結晶が混在した上記水溶液から ABS 樹脂固形分を濾別し、フィルターおよび ABS 樹脂固形分をジエチルエーテルで洗浄した洗浄液を水相に加えて抽出操作を行った後、エーテル相をガスクロマトグラフィー(HP 5890)で分析した結果、0.07 g の 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンが含まれていることが分かった。これは、ポリカーボネート/ABS 樹脂中のポリカーボ
- 25 ネットから得られる 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンの理論収量の、約 70% であった。従って、上記方法によってポリカーボネート/ABS 樹脂中のポリカーボネートが分解され、有用化学原料である 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンを容易かつ効率的に回収できることが確認された。

比較例 1

反応管に、ポリカーボネート樹脂ペレット 0.48 g を入れ、圧力が 3.0 MPa となるように水 4.8 g を仕込み、270℃に予熱したサンドバス中に浸漬させ、30分間保持した。ここで、上記条件におけるイオン積 $K_w = 1.0 \times 10^{-14} \text{ mol}^2 / \text{kg}^2$ 、比誘電率 = 25 であった。その後、反応管を水に浸漬させて室温まで急冷し、内容物をガラス瓶に取り出したところ、内容物は 0.4 g の未分解ポリカーボネートを含んでおり、ポリカーボネート転化率は 16% と計算された。

内容物を実施例 1 と同様にガスクロマトグラフィーで分析した結果、0.01 g の 2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンが含まれていた。これは理論収率の 3% であり、上記条件下ではポリカーボネートの分解反応がほとんど進行せず、また副生成物も多く生成するため、好ましくないことが分かった。

表 1

	PC	処理条件				ビスフェノールA	
		使用量 (g)	温度 (°C)	圧力 (MPa)	イオン積 Kw (mol ² /kg ²)	比誘電率	回収率 (%)
実施例 1		0.11	400	25	10 ⁻²⁰	2	0.10
2		0.08	420	25	10 ⁻²¹	2	0.07
3		0.06	400	20	10 ⁻²²	2	0.05
4		0.07	450	25	10 ⁻²²	2	0.04
5		0.21	400	30	10 ⁻¹⁵	6	0.10
比較例 1		0.48	270	30	10 ⁻¹¹	25	0.01
							3

請 求 の 範 囲

1. ポリカーボネートを超臨界ないし亜臨界の状態にある水で分解せしめることを特徴とするポリカーボネートの分解法。

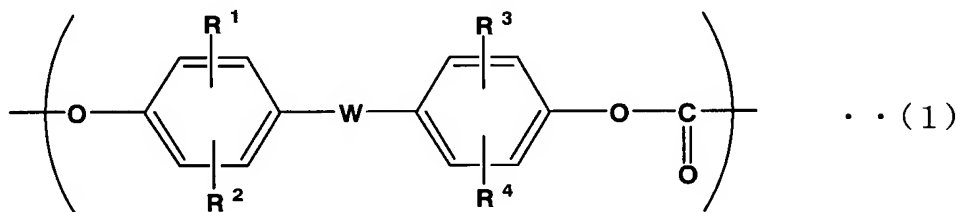
5

2. ポリカーボネートがポリカーボネートを含有する熱可塑性組成物中の該ポリカーボネートである請求項1に記載の分解法。

3. ポリカーボネートが芳香族ポリカーボネートでありそして分解生成物が芳香族ジヒドロキシ化合物である請求項1に記載の分解法。

10

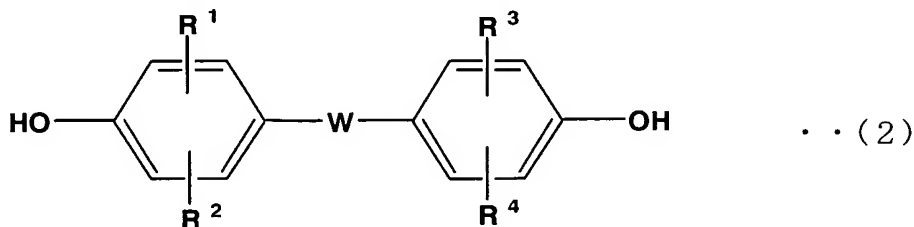
4. 芳香族ポリカーボネートが下記式(1)



ここで、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は互いに独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数6～10のシクロアルキル、炭素数6～10のアリール基または炭素数7～10のアラルキル基またはハロゲン原子であり、そしてWは単結合、炭素数1～10のアルキレン基、炭素数2～10のアルキリデン基、炭素数6～10のシクロアルキレン基、炭素数6～10のシクロアルキリデン基、炭素数8～15のアルキレンーアリーレンーアルキレン基、酸素原子、硫黄原子、スルホキシド基またはスルホン基である、

20

で表わされる繰返し単位からなりそして分解生成物が下記式(2)



ここで R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および W の定義は上記式(1)に同じである、
で表わされる芳香族ジヒドロキシ化合物である請求項3に記載の分解法。

5. 芳香族ジヒドロキシ化合物を晶析により回収する請求項3に記載の分解
5 法。

6. 超臨界ないし亜臨界の状態にある水のイオン積 K_w が $1.0 \times 10^{-15} \text{ mol}^2 / \text{kg}^2$ 以下である請求項1に記載の分解法。

10 7. 超臨界ないし亜臨界の状態にある水の比誘電率が1.0以下である請求項
1 に記載の分解法。

8. 分解を $374 \sim 500^\circ\text{C}$ の範囲で行う請求項1に記載の分解法。

15 9. 分解を $1.8 \sim 4.0 \text{ MPa}$ の範囲で行う請求項1に記載の分解法。

10. 温度が $10 \sim 100^\circ\text{C}$ の範囲にあり、 $0.1 \sim 1.0 \text{ MPa}$ の範囲の圧力
下でありそして芳香族ジヒドロキシ化合物を1重量%以下の濃度で水中に溶解し
ている、ことを特徴とする芳香族ジヒドロキシ化合物水溶液。

補正書の請求の範囲

[2005年6月10日(10.06.05)国際事務局受理：出願当初の請求の範囲1、2、4、5及び10は補正された；出願当初の請求の範囲3及び6は取り下げられた。]

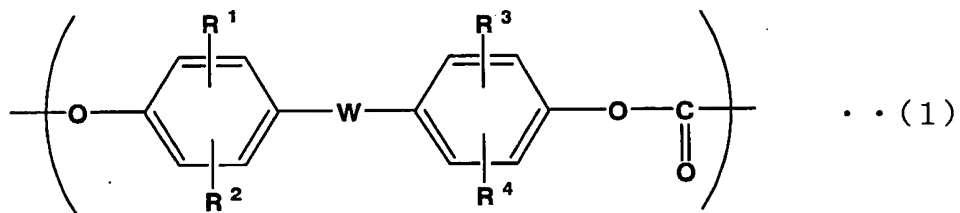
1. (補正後) イオン積 $K_w 10^{-15} \text{ mole}^2 / \text{kg}^2$ 以下である超臨界ないし亜臨界の状態にある水で、芳香族ポリカーボネートを分解して該芳香族ポリカーボネートのジヒドロキシ化合物成分である芳香族ジヒドロキシ化合物を生成せしめることを特徴とするポリカーボネートの分解法。

2. (補正後) 芳香族ポリカーボネートが芳香族ポリカーボネートを含有する熱可塑性組成物中の該ポリカーボネートである請求項1に記載の分解法。

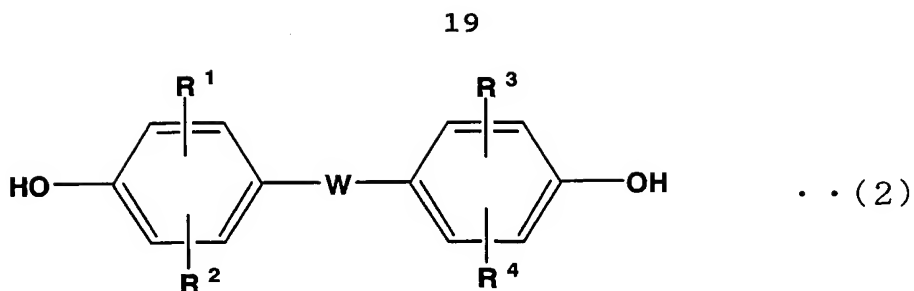
10

3. (削除)

4. (補正後) 芳香族ポリカーボネートが下記式(1)



- 15 ここで、 R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は互いに独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数6～10のシクロアルキル、炭素数6～10のアリール基または炭素数7～10のアラルキル基またはハロゲン原子であり、そしてWは単結合、炭素数1～10のアルキレン基、炭素数2～10のアルキリデン基、炭素数6～10のシクロアルキレン基、炭素数6～10のシクロアルキリデン基、炭素数8～15のアルキレンーアリーレンーアルキレン基、酸素原子、硫黄原子、スルホキシド基またはスルホン基である、
- 20 で表わされる繰返し単位からなりそして分解生成物が下記式(2)



ここで R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および W の定義は上記式(1)に同じである、
で表わされる芳香族ジヒドロキシ化合物である請求項1に記載の分解法。

5 5. (補正後) 芳香族ジヒドロキシ化合物を晶析により回収する請求項1に記載の分解法。

6. (削除)

10 7. 超臨界ないし亜臨界の状態にある水の比誘電率が10以下である請求項1に記載の分解法。

8. 分解を374～500℃の範囲で行う請求項1に記載の分解法。

15 9. 分解を18～40 MPaの範囲で行う請求項1に記載の分解法。

10. (補正後) 温度が10～100℃の範囲にあり、0.1～10 MPaの範囲の圧力下にありそして芳香族ジヒドロキシ化合物を1重量%以上の濃度で水中に溶解している、ことを特徴とする芳香族ジヒドロキシ化合物水溶液。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002184

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B01J3/00, B01D9/02, C07C37/50, C08G64/30, C08J11/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ B01J3/00, B01D9/02, C07C37/50, C08G64/30, C08J11/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 11-286572 A (Tohoku Electric Power Co., Inc.), 19 October, 1999 (19.10.99), Claims; Par. Nos. [0001], [0006] to [0007]; Fig. 1 (Family: none)	1, 2
X	JP 2000-53800 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 22 February, 2000 (22.02.00), Claims; Par. Nos. [0001], [0014]; Fig. 1 (Family: none)	1



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

22 April, 2005 (22.04.05)

Date of mailing of the international search report

17 May, 2005 (17.05.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002184

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

No technical relationship within the meaning of PCT Rule 13 can be seen between the inventions of claims 1-9, since decomposition of polycarbonate using water in the supercritical or subcritical state makes no contribution over the prior art.

Therefore, it is obvious that claims 1-9 do not satisfy the requirement of unity of invention, and thus they are considered to contain eight inventions.

Since the invention of claim 10 does not involve the technical feature common to claims 1-9, claims 1-10 are considered to contain nine inventions.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1 , 2

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B01J3/00, B01D9/02, C07C37/50, C08G64/30, C08J11/14

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B01J3/00, B01D9/02, C07C37/50, C08G64/30, C08J11/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 11-286572 A (東北電力株式会社) 1999.10.19, 特許請求の範囲, 段落【0001】、【0006】-【0007】、【図1】 (ファミリーなし)	1、2
X	JP 2000-53800 A (旭化成工業株式会社) 2000.02.22, 特許請求の範囲, 段落【0001】、【0014】、【図1】 (ファミリーなし)	1

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22.04.2005

国際調査報告の発送日

17.5.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

金 公彦

4D

8925

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

ポリカーボネートを超臨界ないし亜臨界の状態にある水で分解せしめることは先行技術の域を出ないから、請求の範囲1－9に記載された発明の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見出すことはできない。

故に、請求の範囲1－9は発明の単一性を満たしていないことが明らかであり、8の発明に区分されるべきものである。

更に、請求の範囲10に記載された発明は、請求の範囲1－9に共通の事項を有するものではないので、請求の範囲1－10は、9の発明に区分される。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求の範囲1、2

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。